



## Section efficace de la réaction $^{16}\text{O}(t, n) ^{18}\text{F}$ application au dosage de l'oxygène

G.R. Evel, M. da Cunha Belo, I. Linck, L. Kraus

### ► To cite this version:

G.R. Evel, M. da Cunha Belo, I. Linck, L. Kraus. Section efficace de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n) ^{18}\text{F}$  application au dosage de l'oxygène. *Revue de Physique Appliquée*, 1977, 12 (1), pp.81-86. 10.1051/rphysap:0197700120108100 . jpa-00244125

**HAL Id: jpa-00244125**

**<https://hal.science/jpa-00244125>**

Submitted on 1 Jan 1977

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification  
Physics Abstracts  
4.365 — 7.864

## SECTION EFFICACE DE LA RÉACTION $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n}) ^{18}\text{F}$ APPLICATION AU DOSAGE DE L'OXYGÈNE

G. REVEL et M. DA CUNHA BELO

Centre d'Etudes de Chimie Métallurgique, C. N. R. S.  
15, Rue Georges-Urbain, 94400 Vitry-sur-Seine, France

I. LINCK et L. KRAUS

Centre de Recherches Nucléaires et Université Louis-Pasteur,  
67037 Strasbourg Cedex, France

(Reçu le 5 juillet 1976, accepté le 5 août 1976)

**Résumé.** — Des échantillons de tantale oxydés anodiquement ont été irradiés avec des tritons de 1,6 à 3,7 MeV. La section efficace a été déterminée par mesure de la radioactivité du  $^{18}\text{F}$ . La valeur trouvée à 2 MeV est de 220 mb. Nos résultats sont en désaccord avec les valeurs publiées par Jarmie jusqu'à 2,2 MeV et avec la forme de la courbe obtenue par Barrandon et Albert entre 2 et 3 MeV. La réaction  $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n}) ^{18}\text{F}$  a été utilisée pour doser l'oxygène à la surface d'échantillons d'acier inoxydable. Une limite de détection de  $0,004 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  a été obtenue à 2 MeV, après 10 min. d'irradiation avec un faisceau de  $0,2 \mu\text{A}$  de tritons. Les possibilités d'application aux dosages dans la masse sont discutées.

**Abstract.** — Anodic oxide films on tantalum were irradiated with tritons from 1.6 to 3.7 MeV. The cross sections were determined from the measurements of  $^{18}\text{F}$  radioactivity. At 2 MeV the cross section was found to be 220 mb. The results are in disagreement with the values of Jarmie up to 2.2 MeV and with the shape of the curve of Barrandon and Albert between 2 and 3 MeV. The  $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n}) ^{18}\text{F}$  reaction was applied to the determination of surface oxygen concentration on stainless steel. A detection limit of  $0.004 \mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$  was obtained for a 10 min. irradiation with  $0.2 \mu\text{A}$  of tritons at 2 MeV. The possibilities of oxygen determination in the bulk are discussed.

**1. Introduction.** — De nombreuses réactions nucléaires ont été proposées pour doser l'oxygène dans et à la surface des matériaux. Certaines de ces réactions produisent un radioisotope et permettent l'analyse par activation. Parmi celles-ci, la réaction  $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n}) ^{18}\text{F}^*$  envisagée dès 1949 par Smales [1] semble l'une des plus intéressantes. Elle conduit à un radioisotope dont l'activité peut être mesurée commodément (émetteur  $\beta^+$  de 109,8 min. de période) et présente pour des énergies de tritons de 2 MeV seulement, une section efficace déjà importante [2]. Aussi, parallèlement aux méthodes d'analyse par observation directe des réactions nucléaires [3, 5], l'irradiation aux tritons a été souvent utilisée pour doser l'oxygène des surfaces. Pour ces expériences les tritons étaient souvent produits dans un réacteur nucléaire par la réaction  $^6\text{Li}(\text{n}, \text{t}) ^4\text{He}$  [6, 7]. Barrandon et Albert [8] ont montré les avantages qu'il y avait à utiliser les tritons monoénergétiques produits par un accélérateur de particules. Reprenant leurs conditions expérimentales, nous avons dosé l'oxygène dans les couches de passivation formées à la surface de

l'acier inoxydable [9]. Nous nous sommes alors aperçus que les rapports d'activité obtenus sur des échantillons comparables irradiés à 2 et à 3 MeV étaient incompatibles avec la forme de la courbe d'activation publiée par ces auteurs.

Nous nous sommes donc attachés à mesurer la section efficace de la réaction  $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n}) ^{18}\text{F}^*$  à partir d'échantillons de tantale oxydés anodiquement, choisis comme étalons. Les conditions expérimentales sont décrites dans le paragraphe 2. Dans le paragraphe 3, nous discutons les résultats obtenus et dans le paragraphe 4 les applications au dosage de l'oxygène.

**2. Méthodes expérimentales.** — **2.1 PRÉPARATION DES ÉTALONS.** — La courbe d'excitation de la réaction  $\text{O}(\text{t}, \text{n})$  a été précédemment établie notamment par [2, 8, 10] en utilisant des micas ayant chacun une épaisseur de l'ordre de  $5 \mu\text{m}$ . La perte d'énergie des tritons dans le mica n'est donc pas négligeable ; nous avons pensé obtenir une meilleure précision en utilisant une couche d'oxygène plus mince, formée à la surface d'un support

capable d'absorber les pertes par recul et ne s'activant pas au cours de l'irradiation. Un métal de numéro atomique élevé, oxydable de façon uniforme et reproductible pour donner un oxyde stœchiométrique ayant une bonne tenue mécanique, nous a semblé devoir constituer un bon étalon oxygène. Amsel et coll. ont étudié l'oxydation anodique du tantale [11, 12] et montré qu'il était ainsi possible de préparer des étalons pour le dosage de l'oxygène par observation directe de réactions nucléaires. Ces étalons répondant aux impératifs que nous nous étions fixés, nous les avons retenus pour nos expériences.

Nous avons utilisé du tantale de pureté nominale 99,95 % dans lequel nous avons dosé l'oxygène par irradiation aux hélions 3. La teneur a été trouvée égale à 11  $\mu\text{g/g}$ . Les éprouvettes ont été découpées dans de la tôle recuite de 0,2 mm d'épaisseur ; après dégraissage à l'éther elles ont été décapées, puis oxydées anodiquement suivant la méthode préconisée par Amsel et coll. Nous avons vérifié que pour une même densité de courant l'épaisseur de la couche d'oxyde varie linéairement avec le potentiel d'oxydation. La figure 1 montre la variation de la teneur en oxygène à la surface d'échan-

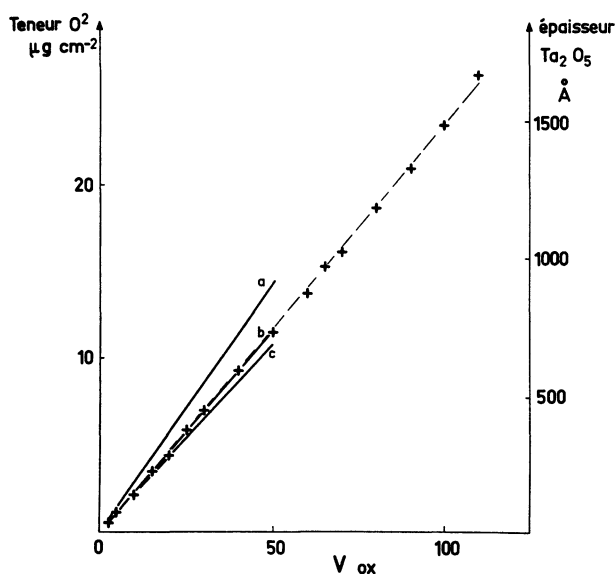


FIG. 1. — Variation de la teneur en oxygène à la surface du tantale en fonction de la tension appliquée. Les courbes a, b et c ont été obtenues par J. Siejka *et coll.* [12] pour les densités de courant respectivement égales à 1  $\mu\text{A}/\text{cm}^2$ , 1  $\text{mA}/\text{cm}^2$  et 10  $\text{mA}/\text{cm}^2$ .

tillons de tantale oxydé à des potentiels compris entre 2,5 et 110 V, pour des densités de courant de l'ordre de 1  $\text{mA}/\text{cm}^2$ . Pour chaque tension, la teneur a été déterminée par irradiation par des tritons de 2,0 MeV, l'étalonnage étant fait avec un échantillon étalon [13] irradié à la même énergie. La droite moyenne que nous avons établie par la méthode des moindres carrés est très proche de celle obtenue par Siejka et coll. [12] pour une densité de courant de 1  $\text{mA}/\text{cm}^2$ . Il est donc possible de préparer des étalons pour le dosage de l'oxygène dans une gamme de concentrations de 1

à 25  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  en faisant simplement varier la tension. Si les conditions de décapage et de densité de courant sont bien contrôlées, ces étalons sont obtenus de façon très reproductible. Une analyse faite par spectrométrie Auger nous a permis de nous assurer qu'à l'exception des premières couches atomiques pour lesquelles nous ne pouvons pas actuellement nous prononcer, les répartitions de l'oxygène et du tantale sont homogènes dans le film d'oxyde et varient brutalement lorsque l'on atteint le métal sous-jacent.

Pour établir la courbe de variation de la section efficace de la réaction  $0(t, n)$  nous avons utilisé des échantillons de tantale oxydés sous une tension anodique de 45 V ; ce qui correspond à une épaisseur d'oxyde voisine de 0,06  $\mu\text{m}$ . La perte d'énergie des tritons dans cette épaisseur est de quelques keV seulement et la quantité d'oxygène est suffisante pour permettre des mesures précises de l'activité induite.

**2.2 CONDITION D'IRRADIATION.** — Les irradiations ont été effectuées au moyen de l'accélérateur Van de Graaff vertical du Centre de Recherches Nucléaires de Strasbourg-Cronenbourg. La précision sur l'énergie du faisceau est de l'ordre de  $10^{-3}$ . Nous avons contrôlé le centrage du faisceau sur les échantillons avant chaque irradiation. Le nombre de charges reçues par l'échantillon a été mesuré au moyen d'un intégrateur de courant calibré avec une pile étalon avant et après chaque série de mesures. Les pertes par électrons secondaires ont été trouvées négligeables. Les échantillons ont été irradiés durant 5 à 10 min. à des énergies comprises entre 1,6 et 3,7 MeV et à des intensités de l'ordre de 0,1  $\mu\text{A}$ . Durant l'irradiation les échantillons étaient sous un vide inférieur à  $1 \times 10^{-5}$  torr.

Après irradiation, la mesure d'activité a été faite au moyen d'un détecteur Ge-Li de 86 cc de volume. L'efficacité de ce détecteur a été mesurée au moyen de diverses sources étalon ( $\text{Eu}^{152}$ ,  $\text{Y}^{88}$ ,  $\text{Co}^{60}$ ) dont une source de sodium 22. Pour les mesures d'annihilation des positons, échantillon et source étalon de  $\text{Na}^{22}$  étaient entourés d'une feuille de cuivre de 1 mm d'épaisseur, le centrage sur le détecteur étant soigneusement contrôlé.

Pour chaque échantillon au moins quatre mesures de radioactivité ont été effectuées entre  $T_0 + 60$  et  $T_0 + 300$  min.,  $T_0$  étant l'heure de fin d'irradiation. Nous avons ainsi pu nous assurer que les activités mesurées décroissaient suivant une période très voisine de 110 min.

La valeur de la section efficace a été calculée à partir de la formule générale :

$$A_0 = N a \cdot \sigma \cdot \Phi (1 - e^{-\lambda t})$$

qui permet d'obtenir

$$\sigma = \frac{A_0}{Q} \cdot \frac{t}{1 - e^{-0,693 \frac{t}{109,8}}} \cdot \frac{k}{C \times R d}$$

où  $\sigma$  est la section efficace exprimée en mb,  
 $A_0$  l'activité en nombre d'impulsions par minute à la fin de l'irradiation,  
 $Q$  le nombre de charges reçues exprimé en  $\mu\text{C}$ ,  
 $t$  la durée de l'irradiation en minute,  
 $C$  la concentration en oxygène  $\mu\text{g.cm}^{-2}$ ,  
 $R_d$  le rendement du détecteur en %,  
 $k$  une constante égale à 0,425.

Dans les conditions expérimentales décrites, l'erreur sur la mesure  $A_0$  est toujours inférieure à 4 %. L'erreur sur le calibrage de l'intégrateur est de l'ordre de 0,5 %, celle due à la mesure du temps d'irradiation est négligeable. L'erreur sur la mesure de rendement du compteur est de l'ordre de 4 à 5 %, celle sur la concentration en oxygène à la surface des étalons tantale est inférieure à 5 %.

Dans ces conditions, nous pouvons admettre que l'erreur totale commise sur la mesure de la section efficace est de l'ordre de 15 %.

**3. Résultats et discussion.** — **3.1 RÉSULTATS OBTENUS AVEC  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ .** — Une cinquantaine d'échantillons de tantale oxydé anodiquement à 45 V ont été irradiés à des énergies comprises entre 1,6 et 3,7 MeV.

Les résultats obtenus sont rassemblés sur la figure 2. La section efficace de la réaction étudiée passe par un

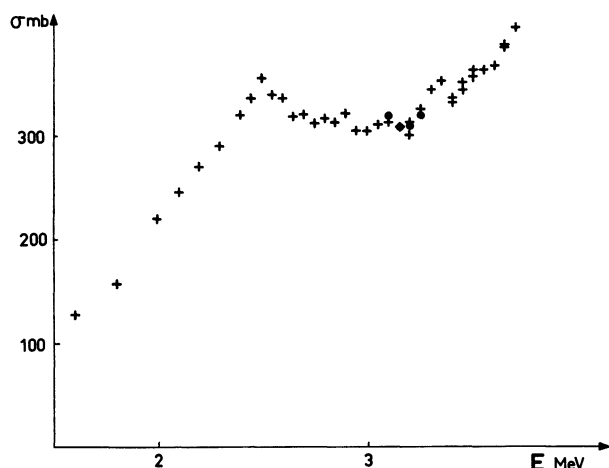


FIG. 2. — Courbe d'excitation de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$  obtenue avec des tantales oxydés anodiquement à 45 V (+) et revêtus d'un dépôt de 1  $\mu\text{m}$  d'or (•).

maximum à 2,5 MeV, décroît légèrement et ne recommence à croître qu'à partir de 3,2 MeV. Nous avons constaté qu'au-dessus de 2,5 MeV la dispersion des points d'une énergie à l'autre était plus grande que celle observée pour des énergies inférieures. Les noyaux de  $^{18}\text{F}^*$  sont émis dans un cône d'environ  $\pm 45^\circ$  par rapport à la direction du faisceau, leur énergie est au plus égale à 1,51 MeV pour une énergie de tritons de 3,70 MeV ; ils sont donc absorbés dans le métal sous-jacent à l'oxyde.

Un film d'or de 1  $\mu\text{m}$  d'épaisseur déposé à la surface

de quelques étalons nous a permis de nous assurer que nous ne perdions pas d'oxygène ou de fluor 18 par arrachement, évaporation ou autre, au cours de l'irradiation.

Les résultats rassemblés sur la figure 2 ont été obtenus en plusieurs expériences, la mesure à 2 MeV servant de point de raccordement. Pour cette énergie 21 déterminations ont donné une valeur moyenne de la section efficace de 220 mb avec un écart type estimé de 6,5 mb.

Il n'en demeure pas moins que la courbe de variation de la section efficace que nous avons obtenue diffère en forme et en valeur absolue de celles publiées précédemment [2, 8, 15]. Nous avons donc refait les mesures de section efficace en utilisant comme ces auteurs des micas minces.

**3.2 RÉSULTATS OBTENUS AVEC DES EMPILEMENTS DE MICAS.** — Nous avons irradié 7 empilements de 6 micas chacun, à des énergies de 2,6 ; 2,8 ; 3,0 ; 3,2 ; 3,4 ; 3,45 et 3,5 MeV. L'épaisseur des micas utilisés pour ces mesures était comprise entre 4,5 et 6  $\mu\text{m}$ .

Les résultats obtenus sont rassemblés dans la figure 3. Sur cette figure nous avons porté la valeur de la section

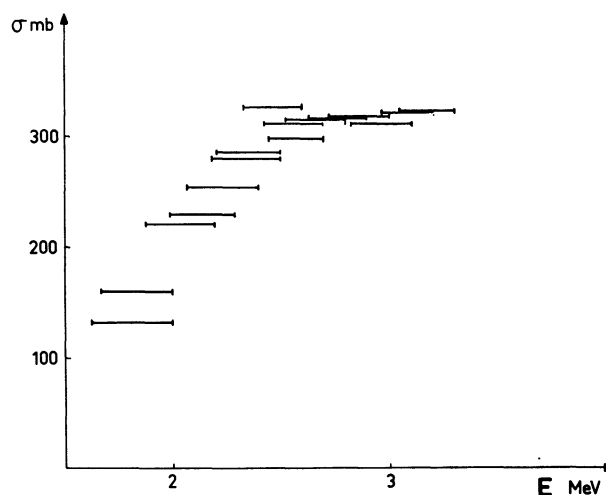


FIG. 3. — Courbe d'excitation de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$  obtenue avec des empilements de micas. La longueur des barres horizontales correspond à la perte d'énergie dans le mica.

efficace au centre de chaque mica compte tenu de son épaisseur et de celle des micas placés devant lui. Le premier mica, par rapport au faisceau, de chaque empilement n'a pas été pris en compte car un certain nombre de noyaux de  $^{18}\text{F}$  sortent, ce qui se traduit par une diminution importante de l'activité mesurée. Pour les micas suivants, nous avons admis, comme les auteurs précédemment cités, que les atomes de  $^{18}\text{F}$  perdus de cette façon étaient compensés par ceux reçus du mica précédent.

L'épaisseur des micas a été mesurée par pesée avec une erreur relative de 4 %. Cette erreur s'ajoute à celle éventuellement commise dans le calcul du parcours des tritons dans les micas d'où une imprécision qui

augmente du premier au dernier mica de chaque empilement. Ces approximations et causes d'erreurs expliquent les dispersions des valeurs obtenues d'un empilement à l'autre mais ne modifient pas fondamentalement l'aspect obtenu pour la variation de la section efficace dans le domaine d'énergie choisi. La valeur trouvée à 2 MeV est de l'ordre de 220 mb.

**3.3 RÉSULTATS OBTENUS AVEC DES MICAS MINCES IRRADIÉS INDIVIDUELLEMENT.** — Pour obtenir une précision meilleure tout en conservant les micas, nous avons irradié des disques de micas ayant une épaisseur de 5 à 6  $\mu\text{m}$  à des énergies comprises entre 2 et 3,3 MeV. Pour éviter les erreurs dues aux noyaux de  $^{18}\text{F}$  qui sortent vers l'avant, nous avons placé une feuille de tantale de 50  $\mu\text{m}$  d'épaisseur derrière chaque mica par rapport au faisceau. Tantales et micas n'ont pas été dissociés pour les mesures d'activité ; l'oxygène situé à la surface et dans le tantale donne, pour une énergie de 3,3 MeV, une teneur apparente de 0,8  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  ce qui est négligeable par rapport à la teneur du mica (600 à 800  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ ).

La figure 4 représente les résultats obtenus au cours de cette nouvelle série d'irradiations. La section efficace

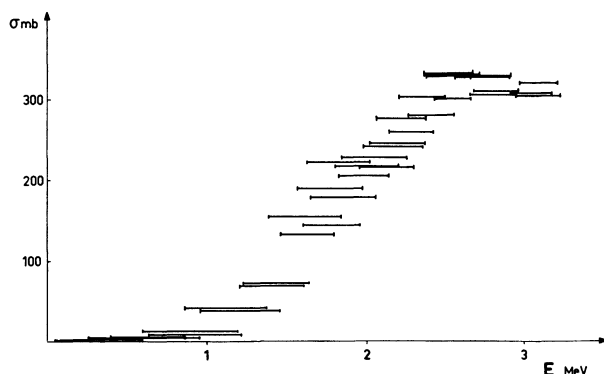


FIG. 4. — Courbe d'excitation de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$  obtenue avec des micas placés sur tantale. La longueur des barres horizontales correspond à la perte d'énergie dans le mica.

à 2 MeV est de l'ordre de 210 mb. Le profil de la courbe n'est pas différent des précédents et nous retrouvons un point d'inflexion aux environs de 2,5 MeV. Toutefois, compte tenu de l'épaisseur des micas ce maximum est beaucoup moins net que dans la courbe obtenue en utilisant du tantale oxydé anodiquement.

**3.4 DISCUSSION.** — Comme on peut le voir sur la figure 5, la valeur absolue et la variation en énergie de nos mesures diffèrent de celles des autres auteurs. Parmi ceux-ci seuls Jarmie [2] et Lorenzen et König [10] ont fait des mesures absolues jusqu'à 2,2 MeV. Leurs valeurs, qui présentent entre elles des différences de 50 à 100 %, sont plus petites que les nôtres. Si la méthode utilisée par Lorenzen et König (empilements de feuilles de polystyrol irradiées par les tritons produits par la réaction  $^6\text{Li}(n, t)^4\text{He}$  dans le flux de

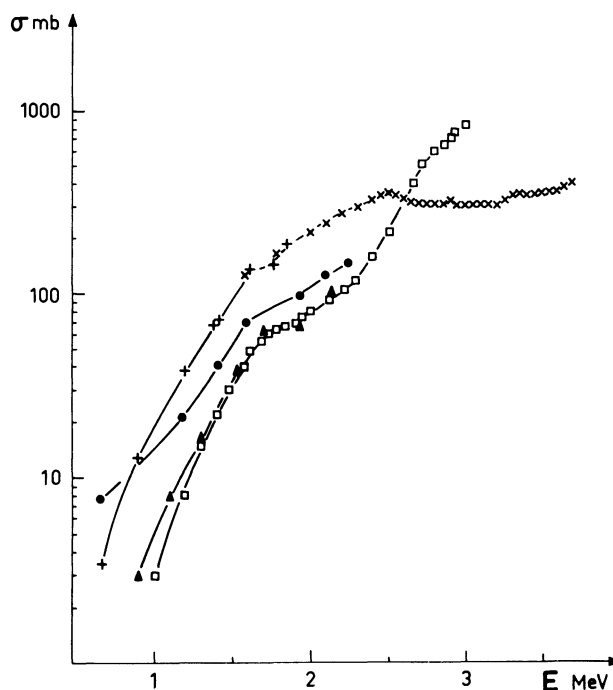


FIG. 5. — Courbes d'excitation de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$  obtenues par Jarmie N. [2] ( $\Delta$ ) ; Lorenzen K. et König D. [10] ( $\bullet$ ) ; Barrandon J. N. et Albert P. [8] ( $\blacksquare$ ) ; ce travail en utilisant des tantales oxydés ( $\times$ ) ou des micas (+).

neutrons de pile) est assez imprécise, celle décrite par Jarmie (accélérateur Van de Graaff et disques de micas de 0,7  $\text{mg}/\text{cm}^2$ ) est comparable à la nôtre, à condition toutefois que les noyaux de  $^{18}\text{F}$  aient été arrêtés par un support épais et comptés avec ceux restés au sein des disques de mica.

A l'échelle absolue près, nous retrouvons par contre la même variation de la section efficace que Jarmie, avec un point d'inflexion vers 1,8 MeV, mais pas la forte augmentation de section efficace indiquée par Barrandon et Albert [8] au-dessus de la barrière coulombienne, même en nous plaçant dans les conditions expérimentales indiquées par ces auteurs.

En cela la section efficace de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$  a un comportement comparable à celui observé pour d'autres voies et les énergies des structures visibles sur les figures 2 et 3 vers 1,8 ; 2,5 ; 2,9 ; 3,1 et 3,3 MeV correspondent à des résonances observées [14] dans les voies  $(t, p_{0,1})$  et  $(t, \alpha_{0,1+2+3})$ . En particulier, le maximum à 2,5 MeV peut être associé à la forte résonance observée en diffusion élastique [15, 16] et dans la voie  $\alpha_0$  [14].

Il est à noter qu'à la fin d'une irradiation courte, l'activité mesurée sur les micas est principalement due au phosphore 30 produit par la réaction  $^{28}\text{Si}(t, n)^{30}\text{P}$ . Il est donc nécessaire de laisser décroître l'activité du  $^{30}\text{P}$  avant de mesurer celle du  $^{18}\text{F}$ .

**4. Application au dosage de l'oxygène.** — **4.1 DOSAGE DE SURFACE.** — A une énergie de 2 MeV, avec un courant de cible de 0,2  $\mu\text{A}$ , des durées d'irra-

diation et de mesure de radioactivité à 10 min. seulement, nous obtenons par la méthode de Currie [17] une limite de détection de  $0,004 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Cette limite est largement suffisante pour la plupart des études faites sur la présence d'oxygène à la surface des métaux. Pour illustrer les possibilités de la méthode nous pouvons citer deux exemples d'application à des échantillons d'acier inoxydable.

**4.1.1 Etude de la corrosion sous tension.** — La corrosion fissurante des aciers inoxydables est souvent étudiée en exposant les échantillons sous contrainte mécanique aux solutions bouillantes de  $\text{MgCl}_2$ . Au cours d'une étude précédente faite dans du  $\text{MgCl}_2$  pur nous avons montré que l'anoblissement du potentiel des alliages, observé après une période d'incubation, s'accompagnait d'un changement de cinétique important dans le processus de l'oxydation [18]. Ce changement coïncide, dans le cas des alliages sensibles à la corrosion fissurante, avec le développement des fissures. Les courbes présentées sur la figure 6 montrent le

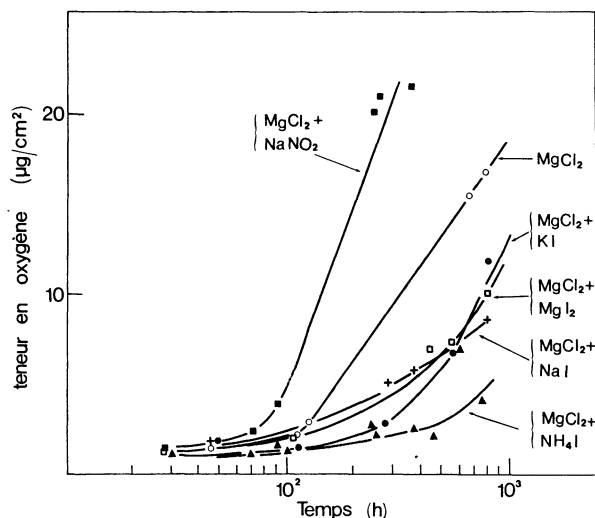


FIG. 6. — Influence de quelques sels minéraux sur la cinétique d'oxydation de l'acier inoxydable dans le  $\text{MgCl}_2$  bouillant.

changement de la cinétique d'oxydation en fonction de l'addition de sels minéraux. Le  $\text{NaNO}_2$ , connu comme un accélérateur de corrosion, provoque une croissance très rapide de la teneur en oxygène de surface et donc de l'épaisseur du film de passivation. Les iodures au contraire, ont une action inhibitrice et retardent la croissance du film. Dans tous les cas le changement de cinétique observé sur les courbes : teneur en oxygène, temps d'exposition, coïncide avec le développement des fissures.

**4.1.2 Etude du traitement de surface.** — Le traitement de surface a une très grande influence sur la résistance de l'acier inoxydable à certains types de corrosion localisée et en particulier à la corrosion par piqûres. Aussi, l'étude analytique des films minces formés à la surface de l'acier est du plus grand intérêt. Nous avons

utilisé notre méthode pour doser l'oxygène à la surface d'échantillons d'acier 18.10 ayant subi divers traitements. Les résultats rassemblés dans le tableau mettent en évidence l'influence du mode de préparation. Nous observons en particulier que la teneur en oxygène obtenue après des traitements de passivation est bien inférieure à celle obtenue après traitement dans l'acide chlorhydrique. Ces résultats sont à rapprocher de ceux obtenus par Quaglia et Weber en utilisant la réaction nucléaire  $^{16}\text{O}(\text{d}, \text{p})^{17}\text{O}$  [4].

TABEAU

*Influence du traitement chimique sur la teneur en oxygène à la surface de l'acier inoxydable 18.10*

Polissage électrolytique dans un bain acéto-perchlorique					
Passivation dans $\text{HNO}_3$ à 65% (15mn)	Décapage dans le mélange nitro-fluorhydrique (10mn)		Passivation dans $\text{HNO}_3$ à 65% (15mn)	Attaque dans $\text{HCl}$ à 37% (2mn)	
0,95 0,90	1,2 1,1			1,6 1,4 1,3	
Séjour dans l'air sec à 25°C (3 jours)					
0,95 1,00	1,4 1,6 1,4 1,7	0,89 0,88	0,85 0,90	0,78 0,81 0,64 0,92	1,2 1,3
Séjour dans l'air sec à 25°C (5 jours)					
Teneur en oxygène exprimée en $\mu\text{g}/\text{cm}^2$					

**4.2 DOSAGE DANS LA MASSE.** — A une énergie de 3,5 MeV la réaction  $^{16}\text{O}(\text{t}, \text{n})^{18}\text{F}^*$  présente une section efficace du même ordre de grandeur que celle de la réaction  $^{16}\text{O}(^3\text{He}, \text{p})^{18}\text{F}$  à son maximum (8-9 MeV) [19] or cette réaction est la plus couramment utilisée pour le dosage de l'oxygène dans les métaux.

D'après la forme de la courbe d'excitation établie par Nozaki et Okano [20], une sensibilité bien meilleure pourrait être obtenue en utilisant des tritons à des énergies et des intensités comparables à celles utilisées pour les dosages aux hélions 3.

A 3,5 MeV, avec seulement  $0,2 \mu\text{A}$  d'intensité, 10 min. d'irradiation et 10 min. de mesure, nous avons obtenu une sensibilité de  $0,0025 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  ce qui correspond dans la masse, à une limite de détection de  $0,36 \mu\text{g}/\text{g}$  pour les dosages faits dans l'aluminium et à  $0,1 \mu\text{g}/\text{g}$  pour les dosages faits dans l'or. En irradiant une heure sous un courant de  $1 \mu\text{A}$  et en augmentant la durée des mesures, ces limites pourraient être abaissées jusqu'à quelque  $10^{-9} \text{ g/g}$ . De plus, contrairement aux hélions 3 et 4, les tritons ne peuvent en principe pro-

duire le  $^{18}\text{F}$  qu'à partir de  $^{16}\text{O}$ . Nous disposons donc d'une méthode de dosage de l'oxygène à la fois sensible et sûre. Nous devons toutefois noter qu'à 3,5 MeV la pénétration des tritons est de 55  $\mu\text{m}$  dans l'aluminium et de 24  $\mu\text{m}$  dans l'or. Si l'on tient compte du fait que la section efficace ne croît vraiment qu'à partir de 1 MeV et qu'il est nécessaire de décaper quelques microns en surface pour éliminer les pollutions dues au recul des atomes de  $\text{F}^{18}$  au cours de l'irradiation, le dosage ne concerne à cette énergie guère plus qu'une épaisseur de 40  $\mu\text{m}$  d'aluminium et de 15  $\mu\text{m}$  d'or, ce qui est peu pour un dosage qui se veut dans la masse. Enfin, les erreurs commises sur l'épaisseur décapée prennent alors beaucoup d'importance.

**5. Conclusions.** — Nous avons mesuré la courbe d'excitation de la réaction  $^{16}\text{O}(t, n)^{18}\text{F}$  entre 1,6 et 3,7 MeV. Les résultats obtenus avec des échantillons de tantale oxydé anodiquement et des micas minces sont en bon accord. Les échantillons de tantale oxydé conduisent à des résultats beaucoup plus précis et leur emploi pourrait être généralisé comme étalon pour les dosages d'oxygène par activation tant aux particules chargées qu'aux photons  $\gamma$ . La courbe que nous avons obtenue diffère de celles publiées précédemment. Elle présente un point d'inflexion très marqué à 2,5 MeV et ne recommence vraiment à croître qu'à partir de 3,2 MeV. Les valeurs de la section efficace que nous avons mesurées et l'absence d'interférence avec d'autres éléments, montrent que les tritons sont probablement les particules les mieux adaptées au dosage par activation de faible teneur en oxygène tant en surface que dans la masse.

Pour les dosages de surface, l'activation est compétitive avec la méthode d'observation directe de la réaction  $^{16}\text{O}(d, p)^{17}\text{O}$ . Les deux méthodes sont non destruc-

tives, indépendantes de l'état chimique de l'oxygène et les sensibilités qu'elles permettent d'atteindre sont du même ordre de grandeur. La méthode par activation aux tritons présente l'inconvénient de nécessiter des particules moins usuelles que les deutons, et une énergie plus élevée ; elle ne donne, à priori, aucune indication sur la répartition de l'oxygène entre la surface et le métal sous-jacent. Par contre, la mesure après irradiation de la radioactivité d'un radioisotope qui ne peut provenir que de l'oxygène, confère à l'analyse par activation une excellente sélectivité. Cette méthode peut être préférée à celle par observation directe de la réaction (d, p) pour certains dosages délicats, notamment ceux concernant les échantillons ayant de fortes teneurs en azote ou en fluor.

Pour les dosages dans la masse, l'activation aux tritons permet d'atteindre des sensibilités comparables à celles obtenues après irradiation aux hélions 3 tout en évitant les risques de confusion avec d'autres éléments légers. Pour que les résultats soient suffisamment précis et significatifs de la teneur intrinsèque des métaux, il serait toutefois nécessaire de disposer de tritons à des énergies supérieures à celles que nous avons pu atteindre.

**Remerciements.** — Nous tenons à remercier tous ceux qui au C. E. C. M. et au C. R. N. nous ont apporté leur aide et plus particulièrement, M. Pastol J. L. et l'équipe de l'accélérateur de 3 MeV pour leur amicale collaboration, M. Jean P. pour la réalisation de la boîte à cible, M<sup>lle</sup> Saettel pour les évaporations d'or sur nos cibles. Nous remercions également MM. Agius B., Ortega C. et Siejka J. du Laboratoire de Physique du Solide de l'E. N. S. Paris pour la préparation de l'étalon oxygène et M. Amsel G. de ses suggestions pour la rédaction de cet article.

### Bibliographie

- [1] SMALES, A. A., *Ann. Rep. Progr. Chem.* **46** (1949) 290.
- [2] JARMIE, N., *Phys. Rev.* **98** (1955) 41.
- [3] AMSEL, G. et SAMUEL, D., *Anal. Chem.* **39** (1967) 1689.  
AMSEL, G., NADAI, J. P., D'ARTEMARE, E., DAVID, D., GIRARD, E. et MOULIN, J., *Nucl. Instrum. and Methods* **92** (1971) 481.
- [4] AMSEL, G., *J. Rad. Chem.* **17** (1973) 15.
- [5] QUAGLIA, L. et WEBER, G., *J. Radioanal. Chem.* **17** (1973) 91.  
QUAGLIA, L., WEBER, G., DAVID, D., VAN AUDENHOVE, J. et PAUWELS, J., *Rapport ITE* 90 (1976).
- [6] THOMAS, J. P., ENGERRAN, J. et TOUSSET, J., *J. Rad. Chem.* **25** (1975) 163.
- [7] WILKNISS, P. E. et BORN, H. J., *Int. J. Appl. Rad. Isot.* **18** (1967) 57.
- [8] DE GOEIJ, J. J. M. et HOUTMAN, J. P. W., *Rapport EUR* 3896 def (1968) 293.
- [9] BARRANDON, J. N. et ALBERT, P., *Revue Phys. Appl.* (1968) 111.
- [10] REVEL, G., DA CUNHA BELO, M., MERIAUX, J. P., SCHNEIDER, C., HILLERET, M. et BOURGUILLLOT, R., *J. Rad. Chem.* **17** (1973) 101.
- [11] LORENZEN, K. et KONIG, D., *Z. Naturforsch.* **16a** (1961) 933.
- [12] AMSEL, G., CHERKI, C., FEUILLADE, G. et NADAI, J. P., *J. Phys. Chem. Solids* **30** (1969) 2117.
- [13] SIEJKA, J., NADAI, J. P. et AMSEL, G., *J. Electrochem. Soc.* **118** (1971) 727.
- [14] Etalon préparé dans le groupe de Physique des Solides de l'Ecole Normale Supérieure par AGIUS, B., ORTEGA, C. et SIEJKA, J.
- [15] GERARDIN, C., WERY, M., SELTZ, R. et MAGNAC-VALETTE, D., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **261** (1965) 1512.  
SELTZ, R., Thèse d'Etat, Strasbourg 1967.  
WERY, M., Thèse d'Etat, Strasbourg 1972.
- [16] ETOH, K., KAWAI, N., MATSUDA, Y. et MURATA, T., *J. Jap. Phys. Soc.* **24** (1968) 422.
- [17] WERY, M., *Nucl. Phys.* **210** (1973) 329.
- [18] CURRIE, L. A., *Anal. Chem.* **40** (1968) 586.
- [19] DA CUNHA BELO, M., REVEL, G. et COLIN, D., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **274** (1972) 1900.
- [20] MARKOWITZ, S. S. et MAHONY, J. D., *Anal. Chem.* **34** (1962) 329.
- [21] NOZAKI, T. et OKAMO, M., *IPCR Japon, Cyclotron Progress Rapport* (1971) 83.